

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K09949

研究課題名（和文）窒素固溶磁気遮蔽材料を用いたニッケルフリー磁性アタッチメントの開発

研究課題名（英文）Development of the nickel-free magnetic attachment using nitrogen solid solution magnetic shielding material

研究代表者

高田 雄京（Takada, Yukyo）

東北大学・歯学研究科・准教授

研究者番号：10206766

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本課題では、磁性を示す 相に周囲から窒素を固溶させて表面のみに 相（非磁性化）を形成し、クラッド加工なしに磁性/非磁性を組み合わせた同一材料による磁気回路を形成し、Niを全く含まない閉路型の歯科用磁性アタッチメントを開発した。相の材料学的特性（磁気特性、機械的性質、耐食性、溶接性など）を明らかにすると共に、レーザー照射による磁性/非磁性の形状制御や効率的な磁気回路の構造及び製法を確立した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

安全性重視の国内外事情を考慮すると、Niを全く含まない閉磁路型の歯科用磁性アタッチメントの開発が切望されているが、国内外を通して未だ開発には至っていない。本研究において、Niを全く含まない非磁性ステンレス鋼として窒素固溶による 相を応用し、部品点数と製造工程の低減化を実現したクラッド加工のない高耐食性の閉磁路型歯科用磁性アタッチメントを開発したことは安全性を担保したQOLの高い歯科治療に貢献する。

研究成果の概要（英文）：In this project, we will form a phase (non-magnetic) only on the surface by dissolving nitrogen from the surroundings into the magnetic phase, and create a magnetic circuit using the same material that combines magnetic and non-magnetic properties without cladding. We have developed a closed-circuit dental magnetic attachment that does not contain any Ni. In addition to clarifying the material properties of the phase (magnetic properties, mechanical properties, corrosion resistance, weldability, etc.), we also established magnetic/nonmagnetic shape control by laser irradiation and the structure and manufacturing method of efficient magnetic circuits.

研究分野：歯科生体材料学

キーワード：磁性アタッチメント 磁気回路 窒素 固溶 オーステナイト 磁気遮蔽 レーザー溶接 相

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

日本で生まれ、日本の最先端技術で進化した閉磁路型の歯科用磁性アタッチメントは、義歯をはじめインプラントの上部構造やエピテーゼなどの固定にも利用されており、国際的な地位を得るに至っている。閉磁路型は、超小型で維持力が高く、磁場の漏洩が少ない特徴を示すが、磁気回路を形成するために磁性ステンレス鋼とNiを含む非磁性ステンレス鋼をクラッド加工で高精度に組み合わせる必要がある。国産のカップヨーク型では、構成材料全体に対するNi含有量は0.3%未満であるが、磁性アタッチメントの国際規格ISO 13017において、0.1%以上のNiを含む場合にはNi含有の申告が義務付けられている。安全性重視の国内外事情を考慮すると、Niを全く含まない閉磁路型の歯科用磁性アタッチメントの開発が切望されているが、所要を満たすNiを含まない非磁性の磁気遮蔽材料が得られていないため、国内外を通して未だ開発には至っていない。

2. 研究の目的

磁性アタッチメントに用いられる磁気遮蔽材料は、口腔内で使用するため高耐食性を持ち、安全性が高いことが前提となる。また、耐食性の劣る希土類磁石を完全に封じて体液から遮断するため、磁性ステンレス鋼との接合性に優れた性質を有しなければならない。そのため、歯科用磁性アタッチメントに用いられている従来の磁気回路では、磁性ステンレス鋼とNiを含む非磁性ステンレス鋼をクラッド加工し、数ミクロンの精度で非磁性ステンレス鋼の厚さを調整する必要がある(図1)。部品点数が多く、コスト高となり、加工が難しく、将来的な製造に大きな困難を抱える現状がある。また、ISOやJISにおいてNi含有量が規格に反映されることになったため、本研究ではNiを含まない新たなステンレス鋼として窒素固溶による非磁性の相を応用することを発想した。

窒素固溶による製法は、磁性アタッチメントに用いられている磁性ステンレス鋼(XM27)に窒素を周囲から固溶させて表面のみを非磁性化し、クラッド加工なしに磁気回路を形成するため、最終工程のレーザー溶接で精度よく調整できる利点を持つ。同一の磁性ステンレス鋼のみを用いることから、耐食性に優れ、部品点数と製造工程の低減化を実現したNiを全く含まない閉磁路型の歯科用磁性アタッチメントの実現を目的とした。

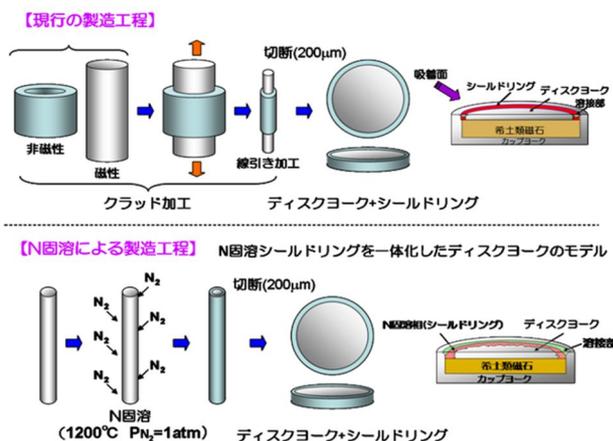


図1 磁性アタッチメントの製造工程の比較(現行とN固溶)

3. 研究の方法

本研究における最終目的は、Niを全く含まない閉磁路型の磁性アタッチメントを開発することである。そのためには、従来利用されてきた非磁性ステンレス鋼に代わる相(磁気遮蔽材料)の製造及び評価と磁気回路を含む磁性アタッチメントの組み立て工程の確立に分けられる。前者では、相(磁気遮蔽材料)の製法確立、相の材料学的特性(磁気特性、機械的性質、耐食性、溶接性など)の解析、相の生物学的評価を行う。後者においては、カップヨークに希土類磁石を入れて磁気回路を付与したディスクヨークを被せ、それらをレーザー溶接で封入する工程がある。窒素固溶によって作られた相と相は接合なしに一体化しているが、希土類磁石を封入する際にレーザー溶接による接合が必要になる。そこで、吸引力の最適化を行い、吸引力の向上を図る多層化技術の構築を行い、歩留まりの良い量産可能な磁性アタッチメントを開発する。

(1) 相(磁気遮蔽材料)の評価

相(磁気遮蔽材料)の製法確立

磁性ステンレス鋼(XM27: Fe-26Cr-1Mo)の丸棒(2~4mm)と板材(厚さ1mm)を所定の大きさに切断し、横型高真空電気炉(現有設備)を用いて1150℃で1~10時間窒素雰囲気中で加熱(窒素固溶処理)し、相の厚さと固溶時間から所定の厚さの相を形成する条件を確立する。

相の材料学的特性の解析

単相になった試料を用い、磁気天秤(2021年度申請)による磁化率測定を行う。同時に引張試験等の材料試験を行い、耐力、引張強さ、伸び、弾性率、硬さを求め、相の材料学的評価を行う。また、単相試料の電気化学的特性と溶出イオンをISO 13017に準拠して測定し、耐食性を評価する。溶接性については、相と相、脱窒素相と相をレーザー溶接し、接合部の電子顕微鏡(SEM)による観察と長期浸漬試験(1%乳酸水溶液)によりクラックの発生等を明らか

にする。

相の非臨床安全性試験による生物学的な安全性評価（東北大学歯学研究科：外部依頼）

磁性ステンレス鋼と 単相試料を JIS T 0993-1 に準拠したクラス の生物学的評価試験（細胞毒性、感作性、刺激性または皮内反応、全身毒性(急性)、亜慢性毒性、遺伝毒性、埋植）を東北大学歯学研究科に外部依頼し、生物学的安全性を評価する。

(2) 磁性アタッチメントの組み立て工程の確立

吸引力の最適化

窒素固溶による磁気回路を持った磁性アタッチメントの試作については、NEOMAX エンジニアリング㈱にカップヨーク型磁性アタッチメントの試作品を製造委託する。試作品の窒素固溶相の形状と吸引力の関係を ISO 13017 に準拠して測定し、最も吸引力が大きくなる固溶相の形状を確認し、吸引力の向上を図る。

多層化技術の構築

相を一気に融解すると、窒素ガスが噴き出し、大きく収縮する恐れがあるので、既に形成した相を 1150 の真空中 (5 × 10⁻²Pa) で 0~30 分加熱し、脱窒素相を生成させて多層構造を作り、相の周囲にレーザー溶接の容易な相の貼り代を作る。非磁性相と磁性相の形状及び層厚の制御法を構築し、最適化した磁気回路の製造技術を確立する。図2に示すレーザー溶接を行い、多層構造の溶接性を比較し、溶接部の安定性及び歩留まりを評価する。

4. 研究成果

(1) 相（磁気遮蔽材料）の評価

相（磁気遮蔽材料）の製法確立

2.6 mm丸棒における相の生成と固溶時間の関係を見ると、相（窒素固溶相）は、丸棒外周から徐々に生成し、固溶時間の増加にともない内部に成長する様子が確認され、10 時間ほどでほぼ相のみに変化した。

生成速度を求めるため、4.22 mm丸棒における層の厚さと固溶時間の関係を図2に示す。生成した相は、円周外側から成長しているが、結晶方向によって成長速度が異なるため、内部に向かって相の境界部に凹凸が生じている。そこで、相の部分を変換し、その面積と同じ面積となるように断面の外周に均一に張り付けてその厚さを層の厚さとした。時間の増加に伴い、層の厚さも増加するが、6 時間以降になるとその増加速度が低下し上凸の曲線となった。1~4 時間の範囲では、約 100 μm/時間の速度で固溶相形成が行われ、加熱時間で厚さを制御可能であることが明らかとなった。

丸棒の直径と固溶時間の関係から固溶相の厚さを 3 次関数で近似し、以下の式を相の厚さの指標とした。

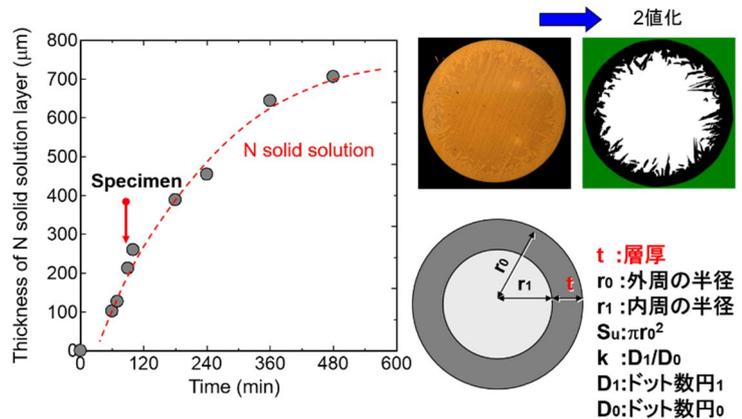


図2 XM27ステンレス鋼棒 (φ4.22mm) におけるN固溶相の層厚と処理時間の関係

$$r_1 = \sqrt{(\pi r_0^2 - k \times S_u) / \pi}$$

$$t = r_0 - r_1 \text{ (固溶相の層厚)}$$

相の材料学的特性の解析

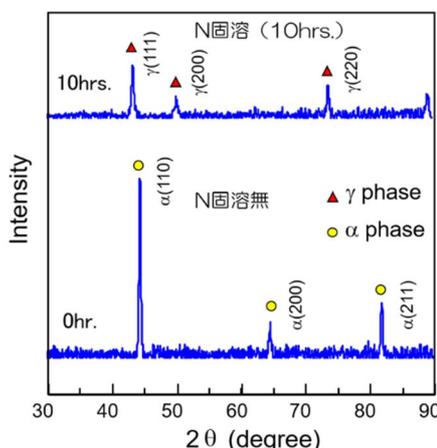
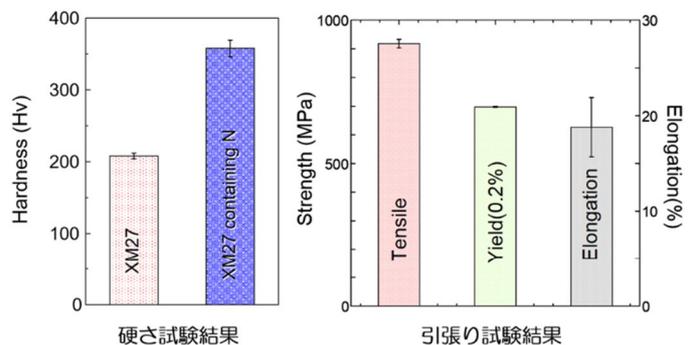


図3 1mm厚のSUS XM27板材のX線回折



N固溶によるγ相 強さ及び耐力：10~20%増加、硬さ：150%以上増加、伸び：20%程度

図4 N固溶相の機械的性質

固溶相（相）の機械的性質を調べるため、1 mm厚の板と 2.1mm の試料を 10 時間の固溶処理

を行ったところ、全く磁石に吸引されず、図3に示すように丸棒と板全体が相に変態した。

硬さ試験及び引張試験結果を図4に示す。SUS XM27の固溶前(相)の硬さは、Hv200前後と柔らかかったが、固溶後(相)になるとHv350を超える値に増加し、Co-Cr合金の硬さを有することが分かった。強さ、耐力、伸びについても、十分な引張強さ(約900MPa)、耐力(約700MPa)、伸び(約20%)を示した。

アノード分極曲線による孔食電位は窒素固溶前よりも高く、不動態保持電流密度もやや低いことから、耐食性の向上が確認できた。

相の非臨床安全性試験による生物学的な安全性評価

細胞実験の結果、12時間後、1日後、2日後において窒素固溶の有無による細胞増殖量に優位性はなかった。1日後まではコントロールよりも細胞増殖量は少なかったが、2日経過すると、N固溶にかかわらず、XM27上での細胞増殖の方が多くなる傾向であった。

有意差もなく、コントロールと同等以上なのでXM27と同等の安全性を有することが確認できた。

動物実験の結果を図5に示す。試料近傍に生成した被膜厚さ(図5両矢印部)を比較すると、SUSXM27窒素固溶材の方が薄層部分が多く、生体組織の異物反応はSUSXM27よりも少ない結果であったが、有意差を見出すことができなかった。

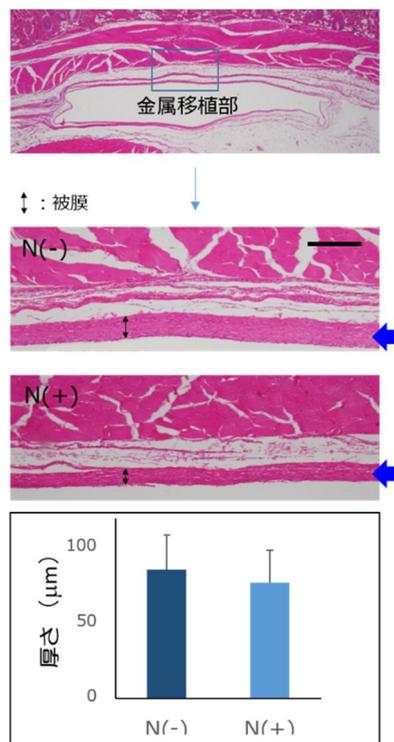


図5 被膜厚さの比較 (P=0.3)

(2) 磁性アタッチメントの組み立て工程の確立

吸引力の最適化

Hyper Slimに用いられているカップヨークと磁石を用いて磁石構造体を試作した。カップヨークとディスクヨークの突合せ部よりも外側にレーザーの焦点を合わせ、相の貼り代部を少なくすることで容易にレーザー溶接できた。

量産品と試作品の吸着力を比較すると、いずれも有意差がみられず、相を利用した磁気回路が十分に機能することが明らかになった。(図6)

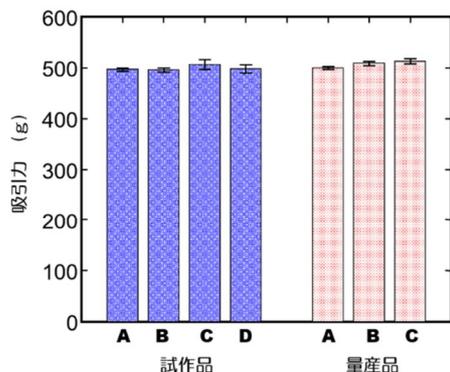


図6 試作品(N固溶)と量産品(現行品)の吸引力比較 (Hyper Slim 3513 相当品)



図7 試作N固溶磁石構造体(3層構造)

多層化技術の構築

相を融解する際には窒素ガスを放出し、相よりも凝固収縮が大きく現れることから、径の大きな磁石構造体になると、溶接により相と相の収縮量が異なるため変形や割れが溶接部近傍に現れることがあり、歩留まりが悪化した。そこで、相と相の突合せ部に脱窒素を行った相を形成し、その部分を貼り代とした相と相が共存した多層構造を持つ新しいシールドリング(図7)を実現した。直径5mmの磁石構造体においても割れや変形が現れず、歩留まりの改善に成功した。

【主な発表論文等】

(1) [雑誌論文] (計4件)

Masatoshi TAKAHASHI, Hirofumi YAMAGUCHI, Yukyo TAKADA. Ideal set-up angle between a pair of dental magnetic attachments for suppression of the loss in retentive force associated with horizontal displacement, Heliyon, 査読有, Vol.8, No.8, 2022, e10361. DOI: 10.1016/j.heliyon.2022.e10361

Masatoshi TAKAHASHI, Genichi TOGAWA, Kento NUMAZAKI, Mary KANYI, Yukyo TAKADA. Resistance force of magnetic attachments against external lateral displacement. J J Mag Dent, 査読有, Vol.31, No.2, 2022, 4-12

高橋正敏、戸川元一、山口洋史、高田雄京、側方力に対する歯科用磁性アタッチメントの抵抗力、日本磁気歯科学会雑誌、査読有、31巻、1号、2022、7-12

高田雄京、高橋正敏、山口洋史、長沼由泰、坂詰花子、菊地 亮、磁気遮蔽材料を目的とした窒素を固溶した非磁性ステンレス鋼の機械的性質と耐食性、日本磁気歯科学会雑誌、査読有、31巻、1号、2022、13-19

(2) [学会発表] (計6件)

高田雄京、磁性アタッチメントの内部構造と国際標準規格 IS013017、日本磁気歯科学会、2023

高田雄京、ニッケルフリーの磁気遮蔽材を用いた歯科用磁性アタッチメントの開発、日本金属学会第7分科会の地方会、2023

高田雄京、歯科用磁性アタッチメントの内部構造と材料学的な使用上の注意点、東京歯科大学理工懇談会第690回例会、2024

高橋正敏、戸川元一、山口洋史、高田雄京、歯科用磁性アタッチメントの維持力を測定する際にクロスヘッドスピードが測定値に与える影響、2021

高田雄京、高橋正敏、戸川元一、坂詰花子、磁気シールド材料を目的とした窒素固溶による非磁性ステンレス鋼の機械的性質と耐食性、日本磁気歯科学会、2021

高田雄京、高橋正敏、戸川元一、坂詰花子、窒素固溶を利用した閉磁路型磁性アタッチメントの開発、日本磁気歯科学会、2021

【研究組織】

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：高橋 正敏

ローマ字氏名：(TAKAHASHI, masatoshi)

所属研究機関名：東北大学

部局名：大学院歯学研究科

職名：助教

研究者番号：50400255

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：戸川 元一

ローマ字氏名：(TOGAWA, genichi)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Masatoshi TAKAHASHI, Hirofumi YAMAGUCHI, Yukyo TAKADA	4. 巻 8
2. 論文標題 Ideal set-up angle between a pair of dental magnetic attachments for suppression of the loss in retentive force associated with horizontal displacement.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Heliyon	6. 最初と最後の頁 10361
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.heliyon.2022.e10361	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Masatoshi TAKAHASHI, Genichi TOGAWA, Kento NUMAZAKI, Mary KANYI, Yukyo TAKADA	4. 巻 31
2. 論文標題 Resistance force of magnetic attachments against external lateral displacement.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 J J Mag Dent	6. 最初と最後の頁 4-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 高橋正敏, 戸川元一, 山口洋史, 高田雄京	4. 巻 31
2. 論文標題 側方力に対する歯科用磁性アタッチメントの抵抗力	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本磁気歯科学会雑誌	6. 最初と最後の頁 7-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 高田雄京, 高橋正敏, 山口洋史, 長沼由泰, 坂詰花子, 菊地 亮	4. 巻 31
2. 論文標題 磁気遮蔽材料を目的とした窒素を固溶した非磁性ステンレス鋼の機械的性質と耐食性	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本磁気歯科学会雑誌	6. 最初と最後の頁 13-19
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高橋正敏, 高田雄京
2. 発表標題 横ずれ方向の外力に対する磁性アタッチメントの抵抗力
3. 学会等名 日本補綴歯科学会第131回学術大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋正敏, 戸川元一, 山口洋史, 長沼由泰, 高田雄京
2. 発表標題 側方力に対する歯科用磁性アタッチメントの挙動
3. 学会等名 日本磁気歯科学会学術大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masatoshi TAKAHASHI, Genichi TOGAWA, Kento NUMAZAKI, Mary KANYI, Yukyo TAKADA
2. 発表標題 Resistance force of magnetic attachments against external lateral displacement The 21st International Conference on Magnetic Applications in Dentistry
3. 学会等名 http://jsmad.jp/intl/i21/
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	高橋 正敏	東北大学・歯学研究科・助教	
	(Takahashi Masatoshi)		
	(50400255)	(11301)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	戸川 元一 (Togawa Genichi)	東北大学・歯学研究科・大学院生 (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関